

光マグノニクスの開拓

佐藤琢哉

東京工業大学理学院物理学系

Pioneering optomagnonics

Takuya Satoh

Department of Physics, Tokyo Institute of Technology

The resonance frequency of spin oscillation in antiferromagnets is extremely high due to the exchange interaction between adjacent spins, and faster magnetization control had been expected. However, it was believed that the inverse Faraday effect, that is the inverse effect of the magneto-optical Faraday effect, does not act on pure antiferromagnets with zero net magnetization. Optical control of antiferromagnets had not been reported. We succeeded in excitation of spin oscillation in NiO, CoO, YMnO₃, and BiFeO₃ by illuminating circularly and linearly polarized light pulses and in optical control of antiferromagnets. We also demonstrated, for the first time, time and phase resolved imaging of spin wave propagation in a ferrimagnet induced via the inverse Faraday effect. It was shown that the wave number distribution of the excited spin wave is proportional to the frequency component of spatial spot of the excitation beam. This fact lead to the directional control of spin wave propagation, thus demonstration of spin wave manipulation by using spatially shaped optical pulses. These results will pave the way to new field of “optomagnonics” for generating and controlling magnetic excitations by polarized light.

1 はじめに

現代の情報社会を支えるエレクトロニクスでは、電子のもつ電荷の自由度やその流れ（電流）が情報を担っている。しかし電流に伴う発熱が避けられず、デバイスの高密度化が限界に達しつつある。一方、電子がもつもう一つの自由度であるスピンの利用技術（スピントロニクス）が盛んに研究されている。個々の電子スピンは方向をもち、ある軸の周りに歳差運動する。その集団運動（スピン波）は、電流と違って原理的には発熱の問題がない。スピン波は絶縁体中でも伝播することができ、スピン波の伝播距離はダンピングの小さい絶縁体中においては数 cm にも達する。そのため、新しい情報媒体として期待され、マグノニクスという新しい分野で研究されている [1]。

磁性体は可視・近赤外光とも密接に結びついている。円偏光や直線偏光光線が磁性体に入射すると、透過光の偏光や強度に変調が生じるというファラデー効果やコットン・ムートン効果などの磁気光学効果を用いると、光によって磁気情報を得ることが可能である。応用面

では、光アイソレーター、光磁気（MO）ディスクの磁区検出などに利用されている。

一方、磁気光学効果の逆効果として逆磁気光学効果（光磁気効果ともいう）が存在する。高強度の円偏光や直線偏光光線が物質に入射すると、物質中に磁気的な変調が生じるという効果である。2005 年、弱強磁性体オルソフェライトに円偏光フェムト秒パルスを照射すると逆ファラデー効果の作用により、ヘリシティーに依存する数 100 GHz のスピン歳差運動が誘起されたことが報告された [2]。

われわれは、このような逆磁気光学効果を利用して光の偏光状態をフルに生かした非熱的な超高速磁化制御—光マグノニクスの開拓—を目指している。より高機能なデバイス応用を進めるために、(1) 反強磁性体を用いて THz 帯のスピン歳差運動を誘起する、(2) フェリ磁性体を用いて GHz 帯のスピン波を誘起し、その空間伝播特性を自在に制御する、の 2 つの方向性で研究を行ってきた。

2 光を用いた反強磁性体の制御

反強磁性体は、スピントロニクス材料として急速に重要性を増している。基底状態では正味の磁化が存在しないため、外部から印加された磁場に対して堅牢であり、漏れ磁場によってドメインの形成が妨げられることがない。さらに副格子磁化間の強い相互作用により、強磁性体と比べて桁違いに高速なダイナミクスを示す。反強磁性体 NiO において、円偏光または直線偏光フェムト秒光パルスによって非熱的に歳差運動を誘起・検出する研究が複数のグループにより報告された [3–9]。われわれはさらに、さまざまな反強磁性体 (NiO [4,9], CoO [10], YMnO₃ [11–13], BiFeO₃ [14]) を用いて、円偏光または直線偏光フェムト秒光パルスによって非熱的に歳差運動を誘起・検出し、そのメカニズムを解明する研究を行ってきた。本稿では、フェムト秒ポンプ・プローブ分光法を使用して、BiFeO₃ 単結晶中にサブ-数 THz 周波数帯におけるコヒーレントマグノンと光学フォノンを生成し、その励起および検出メカニズムを解析した結果について述べる [14]。

BiFeO₃ は反強磁性とともに強誘電性を室温で示すマルチフェロイック物質であり、これまでさまざまな興味深い現象が報告されてきた。反強磁性ネール温度 640 K 以下では変調周期 62 nm のサイクロイドスパイラル構造をもつ。BiFeO₃ の強誘電キュリー温度は 1100 K で、電気分極が試料面直 [111] 方向に沿って配向している強誘電性単ドメインを選択した。BiFeO₃ のマグノン・フォノンダイナミクスを観測するために、透過配置でフェムト秒時間分解ポンプ・プローブ測定を行った。ポンプパルスは、繰り返し周波数 500 Hz、波長 1300 nm、パルス幅 70 fs で、プローブパルスは繰り返し周波数 1 kHz、波長 800 nm である。ポンプ光は方位角 θ の直線偏光とし、円偏光プローブ光の楕円率変化 ($\Delta\eta$) を 2 通りのバランス検出配置 (X、Y プロブ配置) [11] で測定した。

図 1 はポンプ方位角 $\theta = -\pi/4$ で励起し、Y プロブ配置で検出した場合の、300 K での BiFeO₃ の $\Delta\eta$ の遅延時間依存性を示しており、異なる周波数を持つ振動信号が見られた。この振動信号を高速フーリエ変換 (FFT) したところ (挿入図)、図 1(a) の 2.4 THz での高振幅

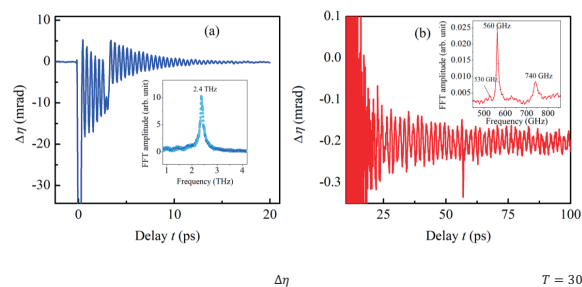


図 1: Temporal evolutions of $\Delta\eta$ in BiFeO₃ up to (a) 20 and (b) 60 ps.

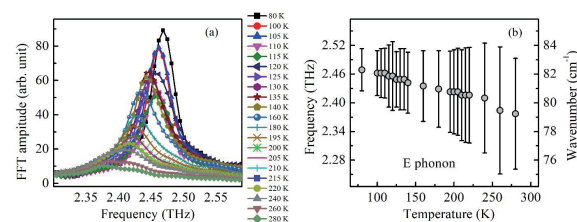


図 2: (a) FFT amplitude spectra of the 2.4-THz mode. (b) Variation of E phonon (2.4 THz).

モードと、図 1(b) の 530, 560, 740 GHz での 3 つの低振幅モードが見つかった。

対称性を考慮した考察により、2.4 THz モードはインパルス誘導ラマン散乱 (ISRS) で励起されたフォノン (E モード) であることが明らかとなった。この FFT スペクトルとそのピーク周波数の温度依存性を図 2(a,b) に示す。図 2(b) は、温度が上昇すると 2.4 THz フォノンモードがソフト化 (約 4%) することを表している。

サブ THz モードについて FFT スペクトルと、そのピークの温度依存性を図 3(a,b) に表す。これらのサブ THz モードは 2.4 THz フォノンモードよりさらに強い温度依存性を示し、マグノンであることを示唆する。これらのマグノンモードの周波数の温度依存性は、以前に報告された BiFeO₃ の THz-TDS [15] の温度依存性と一致することから、530, 560, 740 GHz モードが $\Psi_1^{(2)}$, $\Psi_1^{(1)}$, $\Phi_2^{(1,2)}$ マグノンモードと同定された。この結果は、電場および磁場の影響下でのマグノン・フォノン励起のさらなる研究への道を開くものであり、強誘電性ダイナミクスと反強磁性ダイナミクスの結合関係を明らかにすることが期待される。

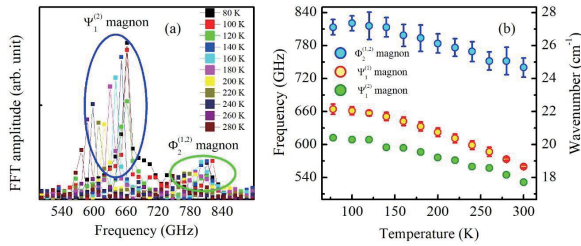


図 3: (a) FFT amplitude spectra of the sub-THz oscillations. (b) Variations of $\Psi_1^{(2)}$ (530 GHz), $\Psi_1^{(1)}$ (560 GHz), and $\Phi_2^{(1,2)}$ (740 GHz) magnon modes.

3 光を用いたスピン波の励起と伝播制御

スピン波は新しい情報媒体として期待されており、スピン波の伝播に関する制御技術の確立が望まれてきた。これまでスピン波は微細加工されたアンテナからのマイクロ波か、スピン偏極電流によって誘起されてきた。しかし、いったんアンテナや電極が加工され、磁場が印加されると、スピン波の伝播特性を直接変えることは容易ではなかった。

われわれは、図 4 に示すように、約 120 fs のパルス幅を持つ光パルスを磁性体に集光することでスピン波を発生させる方法を提案した [16]。光パルスを用いることで、逆ファラデー効果により超高速にスピン波を誘起できる。光スポットを自在に動かし、スポット形状を整形することで、より自由度の高いスピン波制御が可能になる。また別の光パルスでスピン波を検出することにより、高い空間分解能 (1~10 μm)、時間分解能 (100 fs) での測定ができる。

まず光アイソレーターとして広く使われているビスマス添加希土類鉄ガーネット単結晶に、面内に 1 kOe の磁場を試料表面と平行に印加する。試料表面に高強度の円偏光パルス (ポンプ光) を直径 50 μm の円形スポットに集光すると、逆ファラデー効果によりスポット内でスピン歳差運動が始まる。その様子を時間遅延をつけた低強度の直線偏光パルス (プローブ光) の偏光回転角を測定することで時間分解測定する。また歳差運動は、ポンプ光のスポット

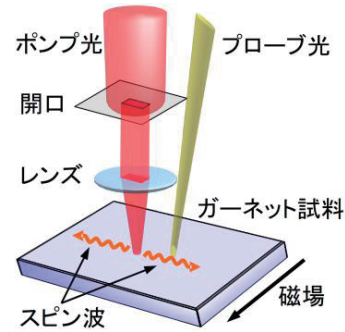


図 4: Generation of spin wave and control of its propagation direction.

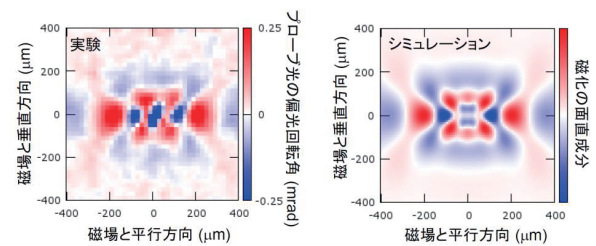


図 5: Spin-wave form at 1.5 ns. (Left) experiment. (Right) simulation.

外にもスピン波として二次元的に伝播していく。ポンプ光に対するプローブ光の相対位置を試料上でスキャンすることで、スピン波伝播を時間・空間分解して観測することにも成功した (図 5 左)。スピン波の波長は 200~300 μm 、群速度は約 100 km/s であった。ポンプ光パルス照射によって誘起されたスピン波の初期状態の空間分布は光パルスのスポット形状によって決まる、というモデルに基づいたシミュレーションは、実験結果をほぼ完全に再現することができた (図 5 右)。

このモデルに基づくと、スピン波の伝播方向を制御するには、試料表面での光スポット形状を最適化すればよいことが予想される。そこで、ポンプ光の集光レンズの前側焦点面に長方形の開口を挿入し、試料表面でのスポット形状を楕円形にした。さらに、楕円の長軸が印加磁場に平行・垂直のとき、スピン波は磁場に対して垂直・平行方向に伝播することを実験およびシミュレーションで実証した。図 6 は長径 280 μm 、短径 70 μm の楕円形ポンプ光パルス

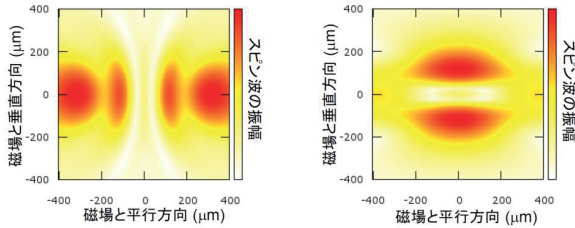


図 6: Amplitude map of spin-wave emission when (left) the longer side of the aperture is parallel to the x -axis (left) and the y -axis (right).

が原点に集光された、1.5 ns 後のスピン波の振幅マップのシミュレーション（楕円の長軸が磁場と垂直（左図）・平行（右図））である。左右の図で、スピン波がそれぞれ磁場に平行・垂直方向に伝播していることがわかる。このように、光のスポット形状に依存して波の伝播方向を制御することに成功した。

4 おわりに

光パルスを用いて超高速、かつコヒーレントにスピン波を生成し、時間分解イメージングする研究は、絶縁体にとどまらず、半導体や金属など幅広い物質群、さらにスピン波と弾性波の結合系などに広がりを見せている [16–24]。今後は、光が本来もっている偏光や位相、波数などの性質をフルに活用してマグノンを制御する、「光マグノニクス」の開拓が期待される。また、非線形マグノンの励起、マグノン・フォノン相互作用を介したスピン・カロリトロニクス、電気磁気効果を介した電気分極制御なども興味深い課題である。

謝辞

本稿は、東京大学生産技術研究所、九州大学理学研究院、東京工業大学理学院にて、多くの共同研究者とともに実施した研究成果の一部をまとめたものです。お世話になった方々にお礼申し上げます。

参考文献

- [1] S. O. Demokritov and A. N. Slavin, eds., *Magnonics* (Springer, 2013).
- [2] A. V. Kimel *et al.*, *Nature* **435**, 655 (2005).
- [3] J. Nishitani, K. Kozuki, T. Nagashima, and M. Hangyo, *Appl. Phys. Lett.* **96**, 221906 (2010).
- [4] T. Satoh *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 077402 (2010).
- [5] T. Higuchi, N. Kanda, H. Tamaru, and M. Kuwata-Gonokami, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 047401 (2011).
- [6] N. Kanda *et al.*, *Nat. Commun.* **2**, 362 (2011).
- [7] J. Nishitani, T. Nagashima, and M. Hangyo, *Phys. Rev. B* **85**, 174439 (2012).
- [8] M. Takahara, H. Jinn, S. Wakabayashi, T. Moriyasu, and T. Kohmoto, *Phys. Rev. B* **86**, 094301 (2012).
- [9] Ch. Tzschaschel *et al.*, *Phys. Rev. B* **95**, 174407 (2017).
- [10] T. Satoh *et al.*, *Nat. Commun.* **8**, 638 (2017).
- [11] T. Satoh *et al.*, *Nat. Photon.* **9**, 25 (2015).
- [12] Ch. Tzschaschel, T. Satoh, and M. Fiebig, *Nat. Commun.* **10**, 3995 (2019).
- [13] Ch. Tzschaschel, T. Satoh, and M. Fiebig, arXiv:1908.01359.
- [14] P. Khan, M. Kanamaru, K. Matsumoto, T. Ito, and T. Satoh, *Phys. Rev. B* **101**, 134413 (2020).
- [15] E. Matsubara, T. Mochizuki, M. Nagai, and M. Ashida, *Phys. Rev. B* **94**, 054426 (2016).
- [16] T. Satoh *et al.*, *Nat. Photon.* **6**, 662 (2012).
- [17] Y. Au *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 097201 (2013).
- [18] I. Yoshimine *et al.*, *J. Appl. Phys.* **116**, 043907 (2014).
- [19] N. Ogawa *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **112**, 8977 (2015).
- [20] F. Busse, M. Mansurova, B. Lenk, M. von der Ehe, and M. Münzenberg, *Sci. Rep.* **5**, 12824 (2015).
- [21] S. Iihama *et al.*, *Phys. Rev. B* **94**, 020401(R) (2016).
- [22] I. Yoshimine, Y. Y. Tanaka, T. Shimura, and T. Satoh, *Europhys. Lett.* **117**, 67001 (2017).
- [23] Y. Hashimoto *et al.*, *Nat. Commun.* **8**, 15859 (2017).
- [24] K. Matsumoto, I. Yoshimine, K. Himeno, T. Shimura, and T. Satoh, *Phys. Rev. B* **101**, 184407 (2020).